



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT **CONFÉDÉRATION SUISSE CONFEDERAZIONE SVIZZERA**

REC'D 2,7 OCT 2003 **WIPO** PCT

Bescheinigung

Die beiliegenden Akten stimmen mit den ursprünglichen technischen Unterlagen des auf der nächsten Seite bezeichneten Patentgesuches für die Schweiz und Liechtenstein überein. Die Schweiz und das Fürstentum Liechtenstein bilden ein einheitliches Schutzgebiet. Der Schutz kann deshalb nur für beide Länder gemeinsam beantragt werden.

Attestation

Les documents ci-joints sont conformes aux pièces techniques originales de la demande de brevet pour la Suisse et le Liechtenstein spécifiée à la page suivante. La Suisse et la Principauté de Liechtenstein constituent un territoire unitaire de protection. La protection ne peut donc être revendiquée que pour l'ensemble des deux Etats.

Attestazione

I documenti allegati sono conformi agli atti tecnici originali della domanda di brevetto per la Svizzera e il Liechtenstein specificata nella pagina seguente. La Svizzera e il Principato di Liechtenstein formano un unico territorio di protezione. La protezione può dunque essere rivendicata solamente per l'insieme dei due Stati.

Bern.

4. JUNI 2003

Eidgenössisches Institut für Geistiges Eigentum Institut Fédéral de la Propriété Intellectuelle Istituto Federale della Proprietà Intellettuale

Patentverfahren Administration des brevets Amministrazione dei brevetti

Heinz Jenni

Best Available Copy

B D ODLER TURENCE

Patentgesuch Nr. 2002 1483/02

HINTERLEGUNGSBESCHEINIGUNG (Art. 46 Abs. 5 PatV)

Das Eidgenössische Institut für Geistiges Eigentum bescheinigt den Eingang des unten näher bezeichneten schweizerischen Patentgesuches.

Titel:

Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel.

Patentbewerber: Ciba Specialty Chemicals Holding Inc. Klybeckstrasse 141 4057 Basel

Anmeldedatum: 30.08.2002

Voraussichtliche Klassen: C08J, C09B

PL/2-22738/CH/P1
Unveränderliches Exemplar
Exemplaire invariable
Esemplare immutabile



Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel.

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel.

-1-

Farbstoffe und ihre Verwendung zum Färben von Kunststoffen und polymeren Partikeln sind bekannt. Es hat sich jedoch gezeigt, dass die alleinige Verwendung der bekannten Farbstoffe zum Massefärben von Kunststoffen den gesteigerten Ansprüchen, insbesondere im Bezug auf die Lichtechtheiten, nicht immer vollauf genügen. Es besteht daher Bedarf nach neuen Färbeverfahren, welche farbstarke und vor allem licht- und heisslichtechte Färbungen in der Masse ergeben und gute allgemeine Echtheiten zeigen.

Es wurde nun überraschenderweise gefunden, dass das erfindungsgemässe Verfahren die oben angegebenen Kriterien weitgehend erfüllt.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit ein Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel, welches dadurch gekennzeichnet ist, dass man einen Farbstoff der Formel

zusammen mit einem Farbstoff der Formel

$$CF_3$$
 H_3C CN $N = N$ N

einem UV-Absorber und gegebenenfalls weiteren Farbstoffen verwendet.

Die Mengen, in denen die Farbstoffe den zu färbenden Kunststoffen oder polymeren Partikeln zugemischt werden, können je nach der gewünschten Farbtiefe in weiten Grenzen schwanken, im allgemeinen haben sich Mengen von 0,001 bis 5 Gew.-%, insbesondere von 0,01 bis 2 Gew.-%, vor allem von 0,03 bis 0,5 Gew.-%, bezogen auf das zu färbende Material als vorteilhaft erwiesen.

Als für das erfindungsgemässe Verfahren geeignete UV-Absorber sind vor allem 2-(2'-Hydroxyphenyl)benzotriazole, 2-Hydroxybenzophenone, Ester von substituierter oder unsubstituierter Benzoensäure, Acrylaten, Oxamiden, 2-(2-Hydroxyphenyl)-1,3,5-triazine, Monobenzoate von Resorcinol oder Formamidine, sowie ein Polyester-UV-Absorber der Formel

mit einem spezifischen Gewicht von 1 200 bis 1400, vorzugsweise von 1300 bis 1350 bei 25°C.

Aus der Klasse der 2-(2'-Hydroxyphenyl)benzotriazole sind z.B. 2-(2'-Hydroxy-5'-methylphenyl)benzotriazol, 2-(3',5'-Di-tert-butyl-2'-hydroxyphenyl)benzotriazol, 2-(5'-tert-Butyl-2'-hydroxyphenyl)benzo-triazol, 2-(2'-Hydroxy-5'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)phenyl)benzotriazol, 2-(3',5'-Di-tert-butyl-2'-hydroxyphenyl)-5-chlorbenzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'methylphenyl)-5-chlorben-zotriazol, 2-(3'-sec-Butyl-5'-tert-butyl-2'-hydroxyphenyl)benzotriazol, 2-(2'-Hydroxy-4'-octyl-oxyphenyl)benzotriazol, 2-(3',5'-Di-tert-amyl-2'-hydroxyphenyl)benzotriazol, 2-(3',5'-Bis-(,-dimethylbenzyl)-2'-hydroxyphenyl)benzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'-(2-octyloxycar-bonylethyl)phenyl)-5-chlorbenzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-5'-[2-(2-ethylhexyloxy)carbonylethyl]-2'-hydroxyphenyl)-5-chlorbenzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'-(2-methoxycarbonyl-ethyl)phenyl)-5-chlorbenzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'-(2-methoxycarbonylethyl)-phenyl)benzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'-(2octyloxycarbonylethyl)phenyl)ben-zotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-5'-[2-(2-ethylhexyloxy)carbonylethyl]-2'-hydroxyphenyl)benzotriazol, 2-(3'-Dodecyl-2'-hydroxy-5'-methylphenyl)benzotriazol, 2-(3'-tert-Butyl-2'-hydroxy-5'-(2-iso-octyloxycarbonylethyl)phenylbenzotriazol, 2,2'-Methylen-bis[4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-6-benzotriazol-2-ylphenol]; das Umesterungsprodukt von 2-[3'-tert-Butyl-5'-(2-methoxycarbo-nylethyl)-2'-hydroxyphenyl]-2H-benzotriazol mit Po-

lyethylenglycol 300; $\left[R - CH_2CH_2 - COO - CH_2CH_2 - \frac{1}{2}\right]_2$, worin R = 3'-tert-Butyl-4'-hydroxy-

5'-2H-benzotriazol-2-ylphenyl, 2-[2'-Hydroxy-3'-(,-dimethylbenzyl)-5'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)phenyl]benzotri-azol; 2-[2'-Hydroxy-3'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-5'-(,-dimethylbenzyl)phenyl]benzotriazol zu nennen.

Aus der Klasse der 2-Hydroxybenzophenone sind z.B. die 4-Hydroxy-, 4-Methoxy-, 4-Octo-xy-, 4-Decyloxy-, 4-Dodecyloxy-, 4-Benzyloxy-, 4,2',4'-Trihydroxy- und 2'-Hydroxy-4,4'-dimethoxy-Derivate zu nennen.

Aus der Klasse der 2-(2-Hydroxyphenyl)-1,3,5-triazine sind z.B. 2,4,6-Tris(2-hydroxy-4-octyloxyphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-octyloxyphenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2,4-Dihydroxyphenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2,4-Bis(2-hydroxy-4-propyloxyphenyl)-6-(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-octyloxyphenyl)-4,6-bis(4-methylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-dodecyloxyphenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-tridecyloxyphenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-[2-Hydroxy-4-(2-hydroxy-3-butyloxypropyloxy)phenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-[2-Hydroxy-4-(2-h



thylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-[2-Hydroxy-4-(2-hydroxy-3-octyloxypropyloxy)phenyl]-4,6-bis(2,4-dimethyl)-1,3,5-triazin, 2-[4-(Dodecyloxy/Tridecyloxy-2-hydroxypropoxy)-2-hydroxyphenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-[2-Hydroxy-4-(2-hydroxy-3-dodecyloxypropoxy)phenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-hexyloxy)phenyl-4,6-diphenyl-1,3,5-triazin, 2-(2-Hydroxy-4-methoxyphenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazin, 2-(4-Hydroxyphenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazin, 2-(4-Hydroxyphenyl)-4-(4-methoxyphenyl)-6-phenyl-1,3,5-triazin zu nennen.

Aus der Klasse der Oxamide sind z.B. 4,4'-Dioctyloxyoxanilid, 2,2'-Diethoxyoxanilid, 2,2'-Dioctyloxy-5,5'-di-tert-butoxanilid, 2,2'-Dioctyloxy-5,5'-di-tert-butoxanilid, 2-Ethoxy-2'-ethyloxanilid, N,N'-Bis(3-dimethylaminopropyl)oxamid, 2-Ethoxy-5-tert-butyl-2'-ethyloxanilid und dessen Gemisch mit 2-Ethoxy-2'-ethyl-5,4'-di-tert-butoxanilid und Gemische von o- und p-Methoxy-disubstituierten Oxaniliden und Gemische von o- und p-Ethoxy-disubstituierten Oxaniliden zu nennen.

Als Ester von substituierter oder unsubstituierter Benzoensäure sind z.B.4-tert-Butyl-phenyl-salicylat, Phenylsalicylate, Octylphenylsalicylate, Dibenzoylresorcinol, bis(4-tert-Butylbenzoyl)resorcinol, Benzoylresorcinol, 2,4-di-tertButylphenyl 3,5-di-tert-Butyl-4-hydroxybenzoat, Hexadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoat oder 2-Methyl-4,6-di-tert-butylphenyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoat zu nennen.

Aus der Klasse der Acrylate sind z.B. Ethyl--cyano-,-diphenylacrylat, Isooctyl--cyano-,-diphenylacrylat, Methyl--carbomethoxycinnamat, Methyl--cyano--methyl-p-methoxy-cinnamat, Butyl--cyano--methyl-p-methoxy-cinnamat, Methyl--carbomethoxy-p-methoxycinnamat oder N-(-Carbomethoxy--cyanovinyl)-2-methylindolin zu nennen.

Ein Monobenzoatresorcinol ist z.B. eine Verbindung der Formel



Ein Formamidin ist z.B. eine Verbindung der Formel

$$H_{5}C_{2}O \longrightarrow N = C \longrightarrow N = C_{2}H_{5}$$
(5).

Als UV-Absorber können ferner auch Kompositionen enthaltend aktive Methin-Verbindungen verwendet werden, wie beispielsweise gegebenenfalls substituierte Malonatester wie sie z.B. in US-A-6,207,740, WO-A-02/14418, EP-A-0 350 386, US-A-4,661,566, US-A-4,749,772 and EP-A-0 272 692 beschrieben sind.

Die Menge des UV-Absorbers kann in einem weiten Rahmen variieren, vorteilhafterweise werden 0,01 bis 1,0 Gew.-%, insbesondere 0,02 bis 0,6 Gew.-%, und vor allem 0,05 bis 0,4 Gew.-% eines UV-Absorbers bezogen auf das Gewicht der Kunststoffe oder polymeren Partikeln verwendet.

Die Verbindungen der Formeln (1) bis (4) sind bekannt und können auf an sich bekannte Art und Weise nach bekannten Verfahren hergestellt werden.

Das erfindungsgemässe Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel erfolgt beispielsweise derart, dass man diesen Substraten unter Verwendung von
Walzwerken, Misch- oder Mahlapparaten die Farbstoffe der Formeln (1) und (2) und ein UVAbsorber zumischt, wodurch der Farbstoff und der UV-Absorber im hochmolekularen
Material gelöst oder fein verteilt wird. Die Zugabe der Farbstoffe und UV-Absorber kann dabei gleichzeitig, oder nacheinander erfolgen, und die Zugabereihenfolge beliebig gewählt
werden kann.

Die Farbstoffe der Formeln (1) und (2) können auch in Kombination mit anderen Farbstoffen verwendet werden.

Bevorzugt wird eine Kombination aus den Farbstoffen der Formeln (1) und (2) und dem Farbstoff der Formel

Das hochmolekulare organische Material mit dem beigemischten Farbstoff und UV-Absorber wird hierauf nach an sich bekannten Verfahren verarbeitet, wie beispielsweise Kalandrieren, Pressen, Strangpressen, Streichen, Spinnen, Giessen oder durch Spritzguss, wodurch das eingefärbte Material seine endgültige Form bekommt.

Das Beimischen des Farbstoffes und des UV-Absorbers kann auch unmittelbar vor dem eigentlichen Verarbeitungsschritt durchgeführt werden, indem beispielsweise ein pulverförmiger Farbstoff, ein pulverförmiger UV-Absorber und ein granuliertes oder pulvriges hochmolekulares organisches Material, sowie gegebenenfalls auch Zusatzstoffe wie beispielsweise Additive, gleichzeitig direkt der Einlasszone einer Strangpresse kontinuierlich zudosiert werden, wo das Einmischen noch knapp vor der Verarbeitung stattfindet. Im allgemeinen ist jedoch ein vorgänglges Einmischen des Farbstoffes und des UV-Absorbers ins hochmolekulare organische Material bevorzugt, da gleichmässiger gefärbte Substrate erhalten werden können.

Oft ist es erwünscht, zur Herstellung von nicht starren Formlingen oder zur Verringerung ihrer Sprödigkeit den hochmolekularen Verbindungen vor der Verformung sogenannte Weichmacher einzuverleiben. Als solche können zum Beispiel Ester der Phosphorsäure, Phthalsäure oder Sebacinsäure dienen. Die Weichmacher können im erfindungsgemässen Verfahren vor oder nach der Einverleibung des Farbmittels in die Polymeren eingearbeitet werden. Es ist ferner möglich, zwecks Erzielung verschiedener Farbtöne den hochmolekularen, organischen Stoffen neben den Farbstoffen der Formeln (1) und (2) auch weitere Farb-



stoffe oder auch andere Farbmittel in beliebigen Mengen zuzufügen, gegebenenfalls zusammen mit weiteren Zusatzstoffen wie z.B. Füllmitteln oder Siccativen.

Bevorzugt ist die Einfärbung von thermoplastischen Kunststoffen insbesondere in Form von Granulaten oder Formlingen, wie z.B. Behältern für feste oder flüssige Stoffe, beispielsweise von Flaschen, insbesondere Behältern und Flaschen für Getränke, vor allem von Bier. Bevorzugte, erfindungsgemäss einfärbbare hochmolekulare organische Materialien sind ganz allgemein Polymere mit einer Di-elektrizitätskonstante ≥ 2,5, insbesondere Polyester, Polycarbonat (PC), Polystyrol (PS), Polymethylmethacrylat (PMMA), Polyamid, Polyethylen, Polypropylen, Styrol/Acrylnitril (SAN) oder Acrylnitril/Butadien/Styrol (ABS).

Besonders bevorzugt sind Polyester und Polyamid. Ganz besonders bevorzugt sind lineare aromatische Polyester, welche durch Polykondensation von Terephthalsäure und Glykolen, insbesondere Ethylenglykol oder Kondensationsprodukten aus Terephthalsäure und 1,4-Bischydroxymethyl)-cyclohexan erhalten werden können, wie beispielsweise Polyethylenterephthalat (PET) oder Polybutylenterephthalat (PBTP); ferner Polycarbonate, z.B. solche aus α,α -Dimethyl-4,4-dihydroxy-diphenylmethan und Phosgen, oder Polymere auf Polyvinyl-chlorid- sowie Polyamid-Basis, wie z.B. Polyamid 6 oder Polyamid 6.6.

Bevorzugt werden mit den Farbstoffen der Formeln (1) und (2) Bierflaschen aus Polyethylenterephthalat (PET) gefärbt.

Die mit dem erfindungsgemässen Verfahren gefärbte vorderhand genannte Materialien, vor allem solche aus Polyester zeichnen sich durch egale und farbstarke Farbtöne von sehr guten Gebrauchsechtheiten, wie vor allem einer guten Licht- und Heisslichtecht-heit aus.

Einen weiteren Gegenstand der Erfindung stellt die Verwendung einer Kombination aus den Farbstoffen der Formeln (1) und (2) und einem UV-Absorber zum Färben von Kunststoffen oder polymeren Partikeln.

Einen weiteren Gegenstand der Erfindung stellen die durch die vorderhand genannten Verfahren massegefärbten Kunststoffe dar.



Die nachfolgenden Beispiele dienen der Veranschaulichung der Erfindung. Darin sind, sofern nicht anders angegeben, die Teile Gewichtsteile und die Prozente Gewichtsprozente. Die Temperaturen sind in Celsiusgraden angegeben. Die Beziehung zwischen Gewichtsteilen und Volumenteilen ist dieselbe wie zwischen Gramm und Kubikzentimeter.

Beispiel 1:

1200,00 g Polyestergranulat (PET Arnite D04-300, DSM) wird 4 Stunden bei 130°C vorgetrocknet und anschliessend mit

0,12 q des Farbstoffes der Formel (1)

0,18 g des Farbstoffes der Formel (2),

0,15 g des Farbstoffes der Formel (6)

und

2,4 g eines UV-Absorbers der Formel

$$\begin{array}{c|c} H_3C \\ \hline \\ N \\ \hline \\ N \\ \hline \\ H_3C \\ \hline \end{array}$$

in einem "Roller rack"-Mischapparat während 15 Minuten bei 60 Umdrehungen pro Minute homogen gemischt.

Die homogene Mischung wird in einem Extruder (twin screw 25 mm der Firma Collin, D-85560 Ebersberg) mit 6 Heizzonen bei einer maximalen Temperatur von 275°C extrudiert, mit Wasser abgekühlt, in einem Granulator (Turb Etuve TE 25 der Firma MAPAG AG, CH-3001 Bern) granuliert und anschliessend 4 Stunden bei 130°C getrocknet. Es resultiert ein grün gefärbtes Polyestergranulat mit guten Allgemeinechtheiten, insbesondere sehr guten Licht- und Heisslichtechtheiten.

<u>Patentansprüche</u>

1. Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel, welches dadurch gekennzeichnet ist, dass man einen Farbstoff der Formel

$$O COC_2H_5 CH_3 CN CN CH_3 COC_2H_5$$

$$O COC_2H_5 CH_3 CN CH_3 COC_2CH_5$$

$$O COC_2H_5 CH_3 COC_2CH_5$$

$$O COC_2CH_5 COC_2CH_5$$

$$O COC_2CH_5$$

$$O COC_2CH_5 COC_2CH_5$$

$$O COC_2CH_5$$

zusammen mit einem Farbstoff der Formel

$$CF_3 \qquad H_3C \qquad CN \qquad \qquad CH_3 \qquad \qquad HN \qquad CH_3 \qquad \qquad (2),$$

einem UV-Absorber und gegebenenfalls weiteren Farbstoffen verwendet.

2. Verfahren gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man zusätzlich zu den Farbstoffen der Formeln (1) und (2) einen Farbstoff der Formel

verwendet.

3. Verfahren gemäss einem der Ansprüche 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, dass man als UV-Absorber einen UV-Absorber aus der Klasse der 2-(2'-Hydroxyphenyl)benzotriazole, der 2-Hydroxybenzophenone, der Ester von substituierter oder unsubstituierter Benzoesäure, der Acrylate, der Oxamide, der 2-(2-Hydroxyphenyl)-1,3,5-triazine, der Monobenzoaten von Resorcinol, der Formamidine, oder ein Polyester-UV-Absorber der Formel

mit einem spezifischen Gewicht von 1 200 bis 1400, vorzugsweise von 1300 bis 1350 bei 25°C verwendet.

- 4. Verwendung einer Kombination aus den Farbstoffen der Formel (1) und (2) gemäss Anspruch 1 und einem UV-Absorber zum Färben von Kunststoffen oder polymeren Partikeln.
- 5. Verwendung einer Kombination aus den Farbstoffen der Formel (1), (2) und (6) gemäss Anspruch 2 und einem UV-Absorber zum Färben von Kunststoffen oder polymeren Partikeln.



6. Verwendung gemäss einem der Ansprüche 4 und 5, dadurch gekennzeichnet, dass man als UV-Absorber einen UV-Absorber aus der Klasse der 2-(2'-Hydroxyphenyl)benzotriazole, der 2-Hydroxybenzophenone, der Ester von substituierter oder unsubstituierter Benzoesäure, der Acrylate, der Oxamide, der 2-(2-Hydroxyphenyl)-1,3,5-triazine, der Monobenzoaten von Resorcinol, der Formamidine, oder ein Polyester-UV-Absorber der Formel

mit einem spezifischen Gewicht von 1 200 bis 1400, vorzugsweise von 1300 bis 1350 bei 25°C, verwendet.

- 7. Verwendung einer Kombination gemäss einem der Ansprüche 4 bis 6 zum Färben von Bierflaschen aus Polyethylenterephthalat (PET).
- 8. Die mit einer Kombination gemäss einem der Ansprüche 4 bis 6 gefärbten Kunststoffe oder polymerer Partikel.
- 9. Die mit einer Kombination gemäss einem der Ansprüche 4 bis 6 gefärbten Bierflaschen aus Polyethylenterephthalat (PET).



Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel.

Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung gefärbter Kunststoffe oder polymerer Farbpartikel, welches dadurch gekennzeichnet ist, dass man einen Farbstoff der Formel

zusammen mit einem Farbstoff der Formel

einem UV-Absorber und gegebenenfalls weiteren Farbstoffen verwendet, insbesondere zum Färben von Bierflaschen aus Polyethylenterephthalat (PET).

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:
BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
FADED TEXT OR DRAWING
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.